

(12)特許協力条約に基づいて公開され

TOTAL PCT/PTO

3 1 JAN 2005

(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



(43) 国際公開日 2004 年2 月26 日 (26.02.2004)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 2004/016374 A1

(51) 国際特許分類7:

27/02, H01G 9/042, 9/052

B22F 1/00, C22C

〒111-0051 東京都 台東区 蔵前2丁目17番4号 Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2003/010126

(22) 国際出願日:

2003年8月8日(08.08.2003)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願2002-235820

2002年8月13日(13.08.2002) JF

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 川鉄鉱業株式会社(KAWATETSU MINING CO., LTD.) [JP/JP];

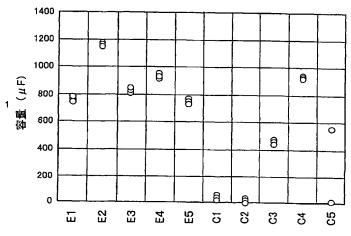
(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 桐原 理 (KIRI-HARA, Tadasu) [JP/JP]; 〒260-0826 千葉県 千葉市中央区 新浜町1番地川鉄鉱業株式会社会社 技術研究所内 Chiba (JP). 佐藤 信之 (SATO, Nobuyuki) [JP/JP]; 〒260-0826 千葉県 千葉市中央区 新浜町1番地川鉄鉱業株式会社会社 技術研究所内 Chiba (JP). 江波戸修(EBATO, Osamu) [JP/JP]; 〒260-0826 千葉県 千葉市中央区 新浜町1番地川鉄鉱業株式会社会社 技術研究所内 Chiba (JP). 斉藤敢(SAITO, Kan) [JP/JP]; 〒260-0826 千葉県 千葉市中央区 新浜町1番地川鉄鉱業株式会社会社 技術研究所内 Chiba (JP).

[続葉有]

(54) Title: NIOBIUM ALLOY POWDER, ANODE FOR SOLID ELECTROLYTIC CAPACITOR AND SOLID ELECTROLYTIC CAPACITOR

(54) 発明の名称: ニオブ合金粉末、固体電解コンデンサ用アノード及び固体電解コンデンサ



1...CAPACITY (µF)

(57) Abstract: A niobium alloy powder which comprises one or more selected from among 0.002 to 20 mass % of molybdenum, chromium and tungsten and 0.002 to 5 mass % of phosphorus and boron, and further comprises 0.005 to 0.10 mass % of hydrogen, the alloy comprising niobium substantially in the balanced amount, and has a specific surface area of 1 to 20 m²/g, an accumulative pore volume of 0.2 ml/g or more, and a percentage of an accumulative pore volume for the pores having a diameter of 1 μ m or less of 10 % or more and a percentage of an accumulative pore volume for the pores having a diameter of 10 μ m or less of 40 % or more, both being relative to the total accumulative pore volume. The niobium alloy powder is improved in the temperature dependence characteristics of its behavior in sintering and can provide a niobium oxide film having enhanced thermal stability, and thus can be advantageously used for manufacturing a solid electrolytic capacitor being reduced in leakage current and having an enhanced capacity.

(57) 要約: 焼結挙動の温度依存性を改善しつつ、ニオブ酸化皮膜の熱安定性を高めることにより、漏れ電流が少なく、かつ、高容量の固体電解コンデンサを作るためのニオブ合金粉末を提供する。ニオブ合金粉末は、それぞれ O. OO2~20質量%のモリブデン、クロム、タングステン、O. OO2~5質量%のリン、ホウ素

/続葉有/





(74) 代理人: 小杉 佳男 , 外(KOSUGI, Yoshio et al.); 〒 添付公開書類: 105-0003 東京都港区 西新橋3丁目3番3号 ペリカンビ ― 国際調査報告書 ル4階 小杉・山田国際特許事務所 Tokyo (JP).

- (81) 指定国 (国内): CN, KR, US.
- CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, 2文字コード及び他の略語については、 定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

明細書

ニオブ合金粉末、固体電解コンデンサ用アノード及び固体電解コンデンサ

技術分野

本発明は、ニオブ合金粉末、その粉末を用いて形成した固体電解コンデンサ用 アノード及び固体電解コンデンサに関するものである。

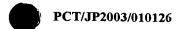
背景技術

従来、電解コンデンサのアノードにはタンタル粉末が用いられてきたが、生産量が少なく、価格が安定しないなどの問題を持っていた。近年、埋蔵量も多く安価なニオブを電解コンデンサの陽極(アノード)に用いようとする動きが加速している。

静電容量の大きい電解コンデンサを製造するためにアノードの材料である二オブ粉末の粒子径を小さくすると、二オブ焼結体を製造するときの焼結挙動が変化する。具体的には焼結時の収縮の温度依存性が大きくなると共に、焼結体内の空孔が小さくなってしまう。このことによって、コンデンサを製造する場合に加熱炉の温度分布による製品の静電容量の偏差を生ずるとともに、陰極に用いる導電性樹脂等の充填が困難となる。従って、粒子径が小さく、かつ、焼結挙動の温度依存性が小さいニオブ粉末が必要となる。さらにニオブ粉末を用いたコンデンサは、一般にタンタル粉末を用いたコンデンサに比べ、漏れ電流が大きく、かつ、高温下での特性劣化が大きいと言う問題がある。

タンタルに窒素、珪素、リン、ホウ素等を添加した弁作用金属の粉末からなる 固体電解コンデンサがある。(例えば、特許文献 1 参照。)また、タンタルにリ ン、イオウ、珪素、ホウ素、窒素等を添加して焼結速度を抑える技術がある(例 えば、特許文献 2 参照。)。

これらの技術では、対象としている粉末の粒子は比較的大きく、高静電容量を 目指した粒子径の小さいニオプ粉末に対しては、これらの技術をそのまま適用す ることはできない。



(特許文献1)

米国特許3825802号公報(コラム2、13行~19行) (特許文献2)

米国特許4544403号公報(コラム2、51行~61行)

発明の開示

本発明は、ニオブコンデンサにおける上記問題を解決したニオブ合金粉末を提供する。本発明の目的は、ニオブ合金粉末の焼結挙動の温度依存性を改善し、酸化皮膜の熱安定性を高めることによって、漏れ電流が少なくかつ高静電容量のコンデンサを作るためのニオブ合金粉末を提供することである。また本発明の別の目的は、このニオブ合金粉末を用いた固体電解コンデンサ用アノード及び固体電解コンデンサを提供することである。

本発明は、モリブデン: $0.002\sim20$ 質量%、 $クロ\Delta:0.002\sim20$ 質量%、 $タングステン:0.002\sim20$ 質量%、リン: $0.002\sim5$ 質量%、 ホウ素: $0.002\sim5$ 質量%のいずれか一種以上を含有し、さらに、水素: $0.005\sim0.10$ 質量%を含有し、残部が実質的にニオブからなり、粉体の比表面積が $1\sim20$ m²/gであり、水銀圧入法による測定で、0.2 m l/g以上の累積細孔容積を有し、累積細孔容積の全体に対して 1μ m以下の直径を有する細孔の容積の累積値が 10%以上、 10μ m以下の直径を有する細孔の容積が 40%以上を占めていることを特徴とするニオブ合金粉末である。

モリブデン、クロム、タングステンを0.002~20質量%、リン、ホウ素を0.002~5質量%のいずれか一種以上を含有させ、さらに水素:0.005~0.10質量%を含有させることによって、焼結時の温度依存性が改善され、固体電解コンデンサ製造に適したニオブ合金粉末が得られる。また、これらの元素を添加したニオブ合金粉末では漏れ電流の値が低下する効果が得られる。

モリブデン、クロム、タングステン、リン、ホウ素の各成分の範囲は、上記下限を外れると焼結時の温度依存性を抑制する効果が得られず、上記上限を超えると漏れ電流が増加しコンデンサの性能が劣化する。従って、各成分範囲は上記のように規定した。また水素を適量に制御したニオブ合金粉末は、プレス成形性が

改善され、プレス後の二次粒子の境界が見えなくなり、成型体エッジの欠けが発生しなくなる。よって、水素を添加しないニオブ合金粉末に比べ成形性を改善することができ、好適である。

粉体の比表面積は、1~20 m²/gが好ましい。比表面積が1 m²/g未満では静電容量が小さなコンデンサしか製造できず、20 m²/gを超えると一次粒子が細かくなりすぎ、コンデンサとして用いる場合の耐圧が確保できない。従って、実用的なコンデンサを得るために、比表面積は上記のように限定される。

また、細孔容積が0.2m1/g未満であったり、累積細孔容積の全体に対して 1μ m以下の細孔容積の累積が1.0%未満であったり、 1.0μ m以下の細孔容積が4.0%未満の場合には、焼結が進みやすくなり、焼結体の表面積が小さくなる、すなわちコンデンサの静電容量が小さくなるという問題がある。さらに、焼結が進むことにより、細孔がさらに小さくなりコンデンサの陰極を形成する時に導電性樹脂等を充填することができなくなるという問題が生じる。なお細孔容積の測定は水銀圧入法を用いる。

上記ニオブ合金粉末において、さらに、窒素: 0.005~1質量%を含有させると、化成処理で生成したニオブ酸化物中の酸素の移動を妨げることができて、長期安定性、耐熱性が向上するので好適である。

また、上記二オブ合金粉末は、一次粒子が凝集した二次粒子の平均粒子径が $10\sim200\,\mu\,\mathrm{m}$ であると、一次粒子が微細粒子であっても成形性を維持することができる。

本発明によれば、固体電解コンデンサに用いるニオブ合金粉末の比表面積と細孔分布を一定範囲内に調整すること、及び特定の成分を加えることにより、固体電解コンデンサを焼結する時の温度依存性を小さくすることができると共に、コンデンサの漏れ電流を低減することができる。従って、本発明のニオブ合金粉末を用いて、高静電容量を有し漏れ電流の小さい固体電解コンデンサ用アノード及び固体電解コンデンサを製作することができる。

図面の簡単な説明

図1は、実施例及び比較例の静電容量の測定値の分布を示すグラフである。

発明を実施するための最良の形態

以下本発明の実施の形態を説明する。

本発明のニオブ合金粉末の製造はCVD装置等で行うことができる。原料としてクロム、モリブデン、タングステン、リン、ホウ素の各々の化合物等を適宜塩化ニオブ中に混合し、水素ガスを用いて還元することにより、ニオブ合金粉末を製造した。

一次粒子の粒子径及び空孔径はCVD装置で反応させるときの原料の滞留時間、温度等やその後の熱処理条件をコントロールすることで以下の粉体特性をもつように適当な径に制御することができる。粉体の比表面積は、 $1\sim2~0~{\rm m}^2/{\rm g}$ とする。 $1~{\rm m}^2/{\rm g}$ 未満では容量が小さなコンデンサしか製造できず、 $2~0~{\rm m}^2/{\rm g}$ を超えると一次粒子が細かくなりすぎコンデンサとして用いる場合の耐圧が確保できない。

また、累積細孔容積が0.2m1/g以上とし、累積細孔容積の全体に対して 1μ m以下の直径を有する細孔の容積の累計が1.0%以上、 1.0μ m以下の直径を有する細孔容積が4.0%以上になるようにする。こうすることによって、焼結が速く進みすぎて表面積が小さくなることによるコンデンサの静電容量が小さくなる問題や、コンデンサの陰極形成時に導電性樹脂等が充填できなくなる問題を防止することができる。なお細孔容積の測定は水銀圧入法を用いる。モリブデン、タングステン、クロム、リン、ホウ素の分析は、フッ化水素酸および硝酸または硫酸を加え、水浴上で加熱分解しICP分析装置で分析を行う。

(実施例)

以下に実施例をあげて本発明の具体例を説明する。

ニオブ原料として五塩化ニオブを使用し、水素還元によってニオブ合金粉末を作成した。その際に、ニオブ原料中にモリブデン、タングステン等の塩化物を添加し、成分を調整した。さらに、アルゴンガス雰囲気中で800~1000℃の熱処理を行ない、粉末の粒子径、細孔容積をコントロールした。このニオブ合金粉末を用いてペレットを作成し、以下の方法で固体電解コンデンサを製作した。

0.1gのニオプ合金粉末に陽極に用いるφ0.3mmのニオブ線材を埋め込

み、嵩密度 $3\,0\,0\,0\,k\,g$ $/m^3$ にプレス成型してペレットを作成した。作成したペレットは、炉内圧 1×10^{-3} P a の雰囲気中で、 $1\,1\,0\,0\sim1\,4\,0\,0$ $\mathbb C$ で焼成した。その焼成したペレットを 0 . 8 質量%のリン酸水溶液に浸漬させ、 $2\,0$ $\mathbb V$ の電圧を 4 時間印加し、化成皮膜を生成させた。

その後40質量%の硫酸溶液中でニオブコンデンサの静電容量の測定及び漏れ電流の測定を行った。漏れ電流は、14V印加時の5分後の値を測定し、静電容量は1.5Vのバイアスをかけた状態での120Hzの値を測定した。結果をCV値で評価した。表1にこれらの結果をまとめて示した。

さらに、上記のようにして化成処理を行ったサンプルE $-1\sim$ E-5、C-1 \sim C-5に、他方の電極(陰極)材料としてポリピロールを焼結体内部に充填した。 さらにカーボンペースト及び銀ペーストを積層した後、リードフレームに搭載し、その後エポキシ樹脂で封入しコンデンサを作成した。このコンデンサの静電容量も1. 5 Vのバイアスをかけた状態での1 2 0 H z の値を測定した。図1に実施例及び比較例の静電容量(μ F)の測定値の分布を示した。図中E $1\sim$ E 5 は実施例、C $1\sim$ C 5 は比較例である。

(表1)

6

						,					
Wet 測定*) 漏れ電流	$\mu A/\mu F$	0.0023	0.0025	0.0018	0.0034	0.0018	0.0032	0.0017	0.0285	0.0324	0.0016
Wet測定*) CV値	$\mu \mathbf{F} \cdot \mathbf{V}/\mathbf{g}$	158400	238000	164000	186000	154000	188000	175000	92000	185000	161000
Н	質量%	0.035	0.54	0.021	0.035	0.028	0.003	0.032	0.019	0.015	0.23
N	質量%	0.02	200	0.03	0.052	0.12	0.03	0.02	0.02	0.03	0.02
В	質量%	0.001	0.001	0.001	0.001	1.21	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
ď	%圉舅	0.001	0.001	0.001	0.33	0.001	0.001	0.001	0.001	6.84	0.001
М	%署道	0.001	0.001	17.5	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
Cr	質量%	0.001	2.58	0.001	0.001	0.001 0.001	3.25	0.001	0.001	0.001	0.001
Mo	質量%	5.23	0.001	0.001	0.002	0.001	0.001	3.8	25.8	0.001	0.001 0.001
二次粒子径	mπ	35	78	46	172	108	29	8	93	102	87
粉体の 比表面積	B∕ ₂ W	4.5	11.3	3.3	6.5	2.6	3.7	2.5	0.9	3.4	2.8
10μm以下 の細孔 容積率	%	42	56	09	46	55	54	33	2.5	43	42
1μm以下 の細孔 容積率	3 %	17	26	35	24	18	28	6	33	35	19
網孔 容積	ml/g	0.53	0.46	0.75	0.81	0. 29	0.18	0.54	0.35	0.65	0.77
		実施例1	実施例 2	実施例3	実施例 4	実施例5	比較例1	比較例 2	比較例3	比較例 4	比較例 5
		B-1	E-2	E-3	B-4	E-5	C-1	C-2	C-3	C-4	C5

*)「Wet 測定」は40質量%の硫酸溶液中での測定であることを示す。

ペレットの焼成前後の形状変化より計算したシュリンゲージ(収縮)は、空孔径を制御することにより改善された。さらに、モリブデン、タングステン、クロム、リン、ホウ素含有量が所定の範囲内では、シュリンケージの温度依存性が小さくなり、静電容量が大きく、かつ、漏れ電流が抑制された。これらの元素を所定の範囲を超えて添加した場合は漏れ電流の値が大きくなった。またこれらのペレットを用いて製作したコンデンサの静電容量を調べたところ、本発明の範囲を外れたサンプルでは、静電容量が不十分なものの発生確率が50%であった。これはペレット焼成時の収縮により空孔が融着するかまたは小さくなり、ポリピロールの充填がうまく行えなかったためと考えられる。

請求の範囲

1. モリブデン: 0. 002~20質量%

クロム: 0. 002~20質量%

タングステン: 0.002~20質量%

リン: 0. 002~5質量%

ホウ素:0.002~5質量%

のいずれか一種以上を含有し、さらに

水素: 0. 005~0. 10質量%

を含有し、残部が実質的にニオブからなり、粉体の比表面積が $1\sim20\,\mathrm{m}^2/\mathrm{g}$ であり、水銀圧入法による測定で、 $0.2\,\mathrm{m}\,1/\mathrm{g}$ 以上の累積細孔容積を有し、累積細孔容積の全体に対して $1\,\mu\,\mathrm{m}$ 以下の直径を有する細孔の容積の累積が $10\,\mathrm{m}$ 以上、 $10\,\mu\,\mathrm{m}$ 以下の直径を有する細孔の容積が $40\,\mathrm{m}$ 以上を占めていることを特徴とするニオブ合金粉末。

2. さらに、

窒素: 0. 005~1質量%

を含有することを特徴とする請求項1記載の二オブ合金粉末。

- 3. 凝集した二次粒子の平均粒子径が $10\sim200\mu$ mであることを特徴とする請求項1に記載のニオブ粉末。
- 4. 凝集した二次粒子の平均粒子径が $10\sim200\mu$ mであることを特徴とする請求項 2 に記載のニオブ粉末。
- 5. 請求項1に記載のニオブ合金粉末を原料とする焼結体であることを特徴と する固体電解コンデンサ用アノード。
- 6. 請求項2に記載のニオブ合金粉末を原料とする焼結体であることを特徴と する固体電解コンデンサ用アノード。
- 7. 請求項3に記載のニオブ合金粉末を原料とする焼結体であることを特徴とする固体電解コンデンサ用アノード。
- 8. 請求項1に記載のニオブ合金粉末を原料とする焼結体をコンデンサ内部に

アノードとして形成してなることを特徴とする固体電解コンデンサ。

- 9. 請求項2に記載のニオブ合金粉末を原料とする焼結体をコンデンサ内部にアノードとして形成してなることを特徴とする固体電解コンデンサ。
- 10. 請求項3に記載のニオブ合金粉末を原料とする焼結体をコンデンサ内部 にアノードとして形成してなることを特徴とする固体電解コンデンサ。

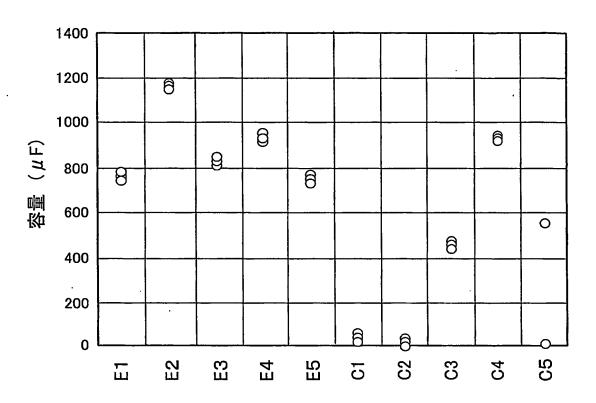


Fig.1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International	application No.
	/JP03/10126

A CLASS	SIFICATION OF SUBJECT MATTER				
	CC1 ⁷ B22F1/00, C22C27/02, H01G9	9/042, H01G9/052			
According t	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
B. FIELD	S SEARCHED				
Minimum d	ocumentation searched (classification system followed	by classification symbols)			
	C1 ⁷ B22F1/00, C22C27/02, H01G9				
Documenta	tion searched other than minimum documentation to the				
	uyo Shinan Koho 1922-1996 i Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003				
Electronic d	lata base consulted during the international search (nam	ne of data base and, where practicable, sear	rch terms used)		
C. DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category*	·Citation of document, with indication, where ap	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
A	WO 01/91953 A1 (Showa Cabot	Super Metal Kabushiki	1-10		
	Kaisha),				
·	06 December, 2001 (06.12.01), Claims	,			
	& EP 1291100 A1				
	W 11 1231100 111				
A	JP 2002-134367 A (Dainippon	Ink And Chemicals,	1-10		
	Inc.),				
	10 May, 2002 (10.05.02), Par. Nos. [0038] to [0042],	100461 - Bi - 1			
•	Far. Nos. [0038] to [0042], (Family: none)	[0046]; Fig. 1			
		3 .			
A	WO 02/15208 A1 (Showa Denko		1-10		
	21 February, 2002 (21.02.02), Claims	,			
	Claims & EP 1324359 A1	1			
	W 11 1024000 111				
		ĺ			
			,		
× Furth	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.			
	al categories of cited documents:	"T" later document published after the inte			
conside	ent defining the general state of the art which is not ered to be of particular relevance	priority date and not in conflict with the understand the principle or theory und			
"E" earlier date	document but published on or after the international filing	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot			
"L" docum	nent which may throw doubts on priority claim(s) or which is	considered novel or cannot be considered step when the document is taken alone	•		
	o establish the publication date of another citation or other I reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the considered to involve an inventive step			
"O" docum	ent referring to an oral disclosure, use, exhibition or other	combined with one or more other such	documents, such		
means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "Combination being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family					
	actual completion of the international search	Date of mailing of the international search			
31 October, 2003 (30.10.03) 18 November, 2003 (18.11.03)					
Name and mailing address of the ISA/ Authorized officer					
Japa	nnese Patent Office	·			
Facsimile N	lo	Telephone No.			



Internal application No. CT/JP03/10126

	tion). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevan	t passages	Relevant to claim No
A	WO 91/19015 A1 (CABOT CORP.), 12 December, 1991 (12.12.91), Claims & JP 6-501054 A		1-10
			. •
		ļ	
	·		
			·



国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP03/10126

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl⁷ B22F1/00, C22C27/02, H01G9/042, H01G9/052

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' B22F1/00, C22C27/02, H01G9/042, H01G9/052

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922-1996年

日本国公開実用新案公報

1971-2003年1994-2003年

日本国登録実用新案公報日本国実用新案登録公報

1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献					
関連する					
請求の範囲の番号					
1-10					
1-10					
111					

X C欄の続きにも文献が列挙されている。

□ パテントファミリーに関する別紙を参照。

- * 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

31.10.03

国際調査報告の発送日

<u>18. 11. 03</u>

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)

郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 特許庁審査官(権限のある職員) 鈴木 毅



4K 9154

電話番号 03-3581-1101 内線 3435



国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP03/10126

C(続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	WO 02/15208 A1 (昭和電工株式会社) 2002. 0 2.21,請求の範囲 & EP 1324359 A1	1-10
A .	WO 91/19015 A1 (CABOT CORPORATION) 1991. 12.12, 請求の範囲 & JP 6-501054 A	1-10
·		
;		
·		
		7